

缺陷对 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ 异质结电子态的影响*

易朝霞^{1) #} 杨浩^{1)2) #} 郑炜严¹⁾ 谢邦晋¹⁾ 郜泽华¹⁾ 陈维炯¹⁾²⁾
 伊合绵¹⁾²⁾ 刘晓雪¹⁾²⁾ 刘亮¹⁾²⁾ 管丹丹¹⁾²⁾ 王世勇¹⁾²⁾
 郑浩¹⁾²⁾ 刘灿华¹⁾²⁾ 李耀义^{1)2) †} 贾金锋¹⁾²⁾

1) (上海交通大学物理与天文学院, 李政道研究所, 人工结构及量子调控教育部重点实验室, 上海 200240)

2) (合肥国家实验室, 合肥 230088)

(2025年7月30日收到; 2025年9月12日收到修改稿)

SnTe 类拓扑晶体绝缘体发生超导转变后, 在其单个磁通涡旋中能够形成受晶体对称性保护的多重 Majorana 零能模. 这种奇特的性质能够降低多个 Majorana 零能模之间相互作用的难度. 最近多重 Majorana 零能模存在的实验证据已在 SnTe/Pb 超导异质结单个磁通涡旋中被观测到. SnTe 是一种非常 p 型的半导体材料, 如何调控其电子性质, 在分辨和操控 Majorana 零能模方面具有重要研究意义. 本文利用分子束外延技术在 $\text{Si}(111)$ 衬底生长的 $\text{Pb}(111)$ 薄膜上制备了 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜, 并且通过扫描隧道显微镜研究了薄膜边缘、畴界以及位错对其电子态的影响. 扫描隧道显微镜的微分电导谱显示, 在薄膜边缘、畴界, 以及位错附近, $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 电子态相对于费米能级的位置能够发生显著改变, 载流子类型能从 p 型转变到 n 型. 在远离这些缺陷的区域, Pb 含量对 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 的费米能级的影响不显著, 但是过多的 Pb 含量会抑制磁通中零能峰的形成. 该研究将为基于 SnTe 类材料的拓扑超导器件的设计提供新的思路.

关键词: 拓扑晶体绝缘体, 缺陷, 超导异质结, 扫描隧道显微镜

PACS: 68.37.Ef, 68.55.-a, 73.20.At, 74.78.-w

DOI: 10.7498/aps.74.20251021

CSTR: 32037.14.aps.74.20251021

1 引言

Majorana 零能模是拓扑超导体中产生的一种奇特的零能拓扑激发态, 具有非阿贝尔交换特性, 可用于拓扑量子计算^[1-3]. 2012 年以来, Majorana 零能模的实验证据已在多种超导体系中被发现, 比如纳米线/超导体异质结^[4,5]、 Bi_2Te_3 类拓扑绝缘体/超导体异质结^[6,7]、铁基超导体^[8-10]、过渡金属硫族化合物^[11]等. 这些超导体系中形成的 Majorana

零能模之间是空间分离的, 然而在实验上研究它们的相互作用非常有挑战. 过去十余年间, 有许多理论预言^[12-17], 还存在空间重叠的多重 Majorana 零能模, 由于受到对称性的保护, 多个 Majorana 零能模可以共存在一起, 如果对称性被破坏, 它们之间会发生杂化形成非零能的普通束缚态, 这种特性有望降低探测 Majorana 零能模之间相互作用的难度. 最近, 多重 Majorana 零能模的实验证据在 SnTe/Pb 超导异质结的单个磁通中被发现^[18].

SnTe 是拓扑晶体绝缘体, 其拓扑表面态受镜

* 国家自然科学基金 (批准号: 12474156, 12488101, 12474121, 92365302, 22325203, 52102336)、科技创新 2030-“量子通信与量子计算机”重大项目 (批准号: 2021ZD0302500) 和上海市科学技术委员会 (批准号: 2019SHZDZX01, 24LZ1401000) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: yaoyili@sjtu.edu.cn

面对称性保护^[19]. 要进一步深入研究该超导体体系的多重 Majorana 零能模以及相关的拓扑超导器件制备, 需要对 SnTe 类材料的费米能级能够做进一步地有效调节. 然而, SnTe 是一种非常 p 型的半导体材料^[20,21], 比如, 生长在超导体 Pb 和 NbSe₂ 表面的 SnTe (001) 薄膜的拓扑表面态的 Dirac 点在费米能级以上分别大约为 0.2 eV^[18,22] 和 0.4 eV^[23]. 费米能级远离拓扑表面态的 Dirac 点不利于直接分辨 Majorana 零能模^[24,25]. 通常调节材料费米能级的方法是利用外来原子进行掺杂或者形成合金. 然而, 引入外来原子很容易破坏 SnTe 类拓扑晶体绝缘体原有的拓扑性, 比如, 掺入 1% 不到的 Bi 即可使其相变为 Z₂ 拓扑绝缘体或者普通绝缘体^[26]. 虽然在 SnTe 中可加入较多的 Pb 使 Sn_{1-x}Pb_xTe 保持拓扑晶体绝缘体原有的拓扑性, 但是在不引起拓扑相变的浓度范围内输运测量显示 Sn_{1-x}Pb_xTe 依然是 p 型半导体^[27]. 另外, Sn_{1-x}Pb_xTe 与 Pb 形成平整的二维界面时, 在界面处还存在由 Sn_{1-x}Pb_xTe 表面态引起的费米能级钉扎效应^[22], 这更增加了调节 Sn_{1-x}Pb_xTe 费米能级的难度.

费米能级钉扎是半导体与金属接触后普遍存在的一个问题, 是由界面态密度很高所致^[28]. 抑制费米能级钉扎效应有多种方法^[29], 比如在金属与半导体之间加入超薄的绝缘层, 换用界面态密度低的金属^[30] 等. 在 Sn_{1-x}Pb_xTe 与 Pb 之间加入超薄的绝缘层或者把 Pb 换成其他超导体的方法存在减弱超导近邻效应、破坏拓扑晶体绝缘体态等问题. 在不减弱超导近邻效应的情况下, 比较有效地抑制费米能级钉扎效应的方法是降低半导体与金属之间接触的维度^[31,32], 比如 Sn_{1-x}Pb_xTe 与 Pb 形成准一维接触的侧向异质结^[33,34], 或者增大 Sn_{1-x}Pb_xTe 与 Pb 形成二维接触的纵向异质结的界面粗糙度^[22]. 由于侧向异质结尺寸还不够大, 增大界面粗糙度也会降低表面平整度, 这些问题也都不利于探测薄膜表面的磁通束缚态, 还需对超导异质结做进一步优化.

本文利用分子束外延生长技术, 在 Pb(111)/Si(111) 衬底上沉积 SnTe 制备出不同生长条件的 Sn_{1-x}Pb_xTe (001) 薄膜, 并利用原位低温扫描隧道显微镜成像及其谱学技术 (scanning tunneling microscopy/spectroscopy, STM/STS) 测量了薄膜边缘、畴界、位错以及 Pb 含量对 Sn_{1-x}Pb_xTe 薄膜电子态的影响. 测量显示, 薄膜边缘、畴界和位错

这些准一维缺陷会抑制 Sn_{1-x}Pb_xTe 与 Pb 形成的二维界面处的费米能级钉扎效应, 使得这些缺陷附近的 Sn_{1-x}Pb_xTe 的电子态的移动范围可以大到 0.4 eV 左右. 另外, 虽然 Pb 含量对 Sn_{1-x}Pb_xTe 的费米能级的影响不显著, 但是过多的 Pb 含量会抑制磁通中零能峰的形成. 这些结果意味着对于 SnTe 类拓扑晶体绝缘体与超导体 Pb 形成二维接触的纵向异质结, 可以不用外来元素掺杂而只需在平整薄膜中引入一些低维结构, 就有望同时满足既能显著调节费米能级又有利于在平整表面探测磁通束缚态.

2 实验方法

样品制备和测量是在一台超高真空扫描隧道显微镜与分子束外延联合系统中完成 (Unisoku USM-1300, 本底真空优于 4×10^{-10} Torr, 1 Torr = 1.33×10^2 Pa). 颗粒状的 Pb (纯度 99.9999%)、SnTe (纯度 99.999%) 和 PbTe (纯度 99.999%) 分别装于不同的努森源 (Knudsen cell) 中用于薄膜的分子束外延生长. 本实验中沉积速率分别为 1.17, 0.11, 0.03 nm/min. 先对 Si (111) 衬底进行多次 1200 °C 的高温短时间退火以获得 Si (111)-(7 × 7) 重构表面. 然后在室温的 Si (111)-(7 × 7) 表面沉积 1—2 原子层厚的 Pb, 随后进行 1200 °C 退火 30 s, 以制备 Pb 的非公度条纹状重构 (striped incommensurate reconstruction, SIC), Si (111)-SIC-Pb. 将该重构样品温度稳定在 100 K 以后, 在其表面沉积 100 nm 厚的 Pb 薄膜, 随后使样品自然升温至室温, 从而可得到大面积原子级平整的 Pb 薄膜^[18,22]. 控制 Pb 薄膜温度 (室温—200 °C), 其温度稳定后直接沉积 SnTe, 可进一步获得长在 Pb 上的 Sn_{1-x}Pb_xTe 薄膜. 扫描隧道显微镜配有 ³He 制冷系统和磁场, 可在 4.2 K 和 0.4 K 的低温环境下利用电化学腐蚀的 W 针尖对样品进行测量. 针尖接地, 电压加在样品上, 通过反馈回路, 在恒流模式下可获得样品表面形貌信息. 运用锁相放大技术, 对样品施加 991 Hz、mV 量级的交流电压信号, 可从微分电导谱 (dI/dV) 中获得样品电子态的信息.

3 实验测量结果与讨论

将平整 Pb 薄膜缓慢加热到 190 °C 后沉积

SnTe 可以得到大面积原子级平整的 SnTe 薄膜^[18], 如图 1(a) 所示. 在平整 SnTe 薄膜台面上测得的 dI/dV 谱显示其最小值位于偏压 0.2 V 处 (图 1(b)). 由于样品接地, dI/dV 谱的零偏压处对应样品的费米能级, 因此 dI/dV 谱的最小值对应的电子态位于费米能级以上 0.2 eV, SnTe 薄膜呈现 p 型特征^[20,21]. 从图 1(a) 所在位置, 水平连续移动 STM 针尖大约 4 μm 的距离后, 可以找到 SnTe 薄膜边缘 (图 1(c)). 图 1(c) 显示有一条明显的沟壑, 其深度约 9 nm (图 1(d)). 沟壑两边是两个不同生长方向的薄膜, 它们在此处未连成一片. 在薄膜边缘附近测量的 dI/dV 谱显示, dI/dV 谱的最小值可以非常靠近费米能级 (图 1(e)), 还可以在费米能级以下 0.2 eV (图 1(f)), 这意味着薄膜边缘发生能带弯曲并且呈现 n 型特征. 虽然在薄膜边缘附近的原子分辨图显示有一些 Pb 原子从沟壑底部的 Pb 薄膜扩散上来 (图 1(g), (h)), 但是这些浓度的 Pb 不足

以使 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜从 p 型转变到 n 型^[22,35].

前期我们在平整的 Pb 薄膜上用 190 $^\circ\text{C}$ 的衬底温度制备过 6 nm 厚的 SnTe 薄膜, dI/dV 谱最小值大多在费米能级以上 0.1 eV 附近^[22]. 另外, Pb 薄膜上生长的 SnTe 薄膜边缘处发生的能带弯曲与我们之前制备的 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ -Pb 侧向异质结中发生的能带弯曲类似^[33,34]. 由于平整界面处 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜与下面的 Pb 薄膜呈二维接触, 存在表面态引起的费米能级钉扎效应^[22,36], 生长在 Pb 上的 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜仍保持 p 型特征. 而在薄膜边缘附近, 二维接触变成准一维接触, 费米能级钉扎效应受到抑制^[31,32,37]. 由于 Pb 具有较小的功函数^[38], 一部分电子在电场驱使下从 Pb 转移到 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜边缘附近, 于是薄膜边缘附近发生显著的能带弯曲^[33], p 型的 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜在边缘处变为 n 型.

除了薄膜边缘, 我们还尝试探测其他缺陷对薄膜电子性质的影响. 在 Pb 膜上加温沉积 SnTe 得

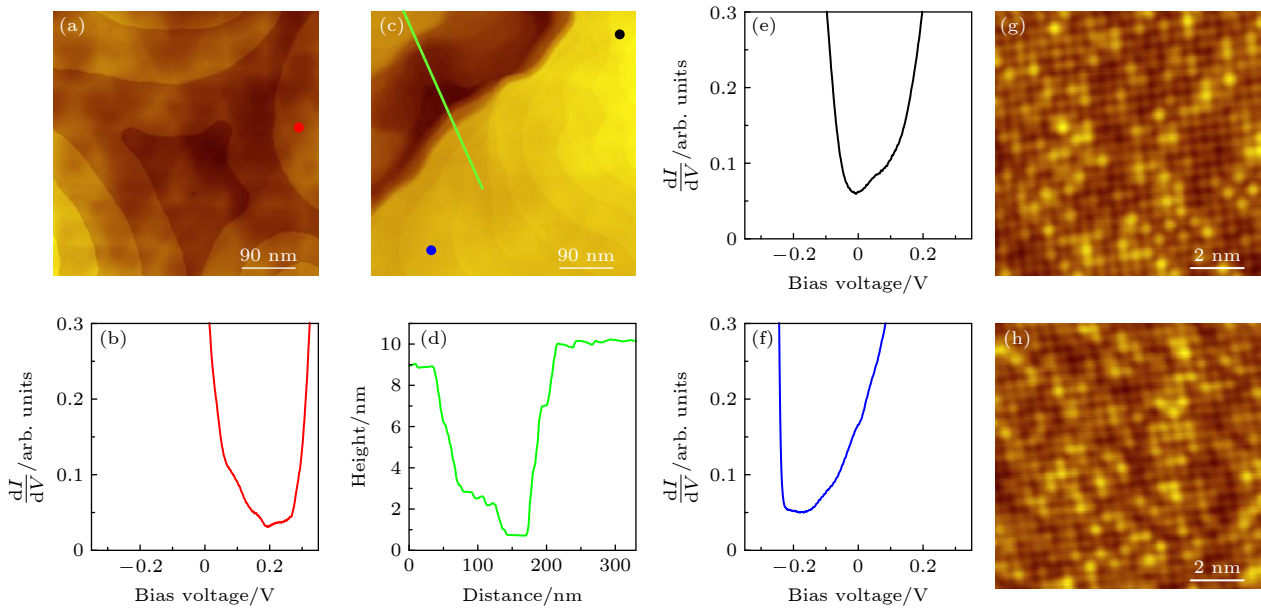


图 1 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ 的薄膜边缘附近的 STM 和 STS 测量 (a) 在 190 $^\circ\text{C}$ 的 Pb 膜上沉积 SnTe 得到的平整薄膜的 STM 图, 扫描尺寸 450 nm \times 450 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 2$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (b) 在图 (a) 中红点处测的 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.35$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (c) 薄膜边缘附近的 STM 图, 扫描尺寸 450 nm \times 450 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 2$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (d) 沿图 (c) 中绿色线条处的高度轮廓图, 沟壑的深度约 9 nm; (e) 在图 (c) 中黑点处测的 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.20$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (f) 在图 (c) 中蓝点处测的 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.35$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (g) 和 (h) 分别为在图 (c) 黑点和蓝点处的原子分辨 STM 图, 扫描尺寸 10 nm \times 10 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.8$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, 在图 (g) 和 (h) 中 Pb 含量分别为 23.2% 和 25.1%

Fig. 1. STM and STS measurements near the edge of $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ film grown on Pb: (a) STM image (450 nm \times 450 nm) of the flat film obtained by deposition of SnTe on Pb film at 190 $^\circ\text{C}$ ($V_{\text{set}} = 2$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (b) dI/dV spectrum taken at the red dot in Fig. (a) ($V_{\text{set}} = 0.35$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (c) STM image (450 nm \times 450 nm) near the film edge ($V_{\text{set}} = 2$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (d) line profile taken along the green line in (c), the depth of the trench is about 9 nm; (e) dI/dV spectra taken at the black dot in (c) ($V_{\text{set}} = 0.20$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (f) dI/dV spectra taken at the blue dot in (c) ($V_{\text{set}} = 0.35$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (g), (h) atomically resolved STM images (10 nm \times 10 nm) taken at the black and blue dots in (c), respectively, $V_{\text{set}} = 0.8$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, the Pb contents of (g) and (h) are 23.2% and 25.1%.

到的平整薄膜中的缺陷密度很低, 要找到薄膜边界需要将针尖移动几个微米的距离. 为了提高薄膜的缺陷密度, 改变生长条件, 先在 Pb 膜上室温沉积 20 nm 厚的 SnTe, 然后升高衬底温度到 180 °C 继续沉积 20 nm 厚的 SnTe. 如图 2(a) 所示, STM 形貌图显示该条件制备的薄膜的台阶宽度明显小于图 1 中直接在 Pb 膜上加温沉积 SnTe 制备的薄膜的台阶宽度. 除了弯曲的台阶, 在样品中经常可以看见一些笔直的台阶. 在笔直的台阶两侧区域扫描的原子分辨 STM 图显示, 它们的晶格取向明显不同, 而在笔直台阶同侧区域晶格取向相同 (图 2(b)—(e)), 这说明这些笔直的台阶是由两侧晶格取向不同的畴在生长过程中在此接触形成畴界所导致. 图 2(b)—(e) 进一步显示, 靠近畴界的 Pb 含量要明显高于远离畴界的 Pb 含量, 这说明畴界中存在空隙使得底部的 Pb 膜中的 Pb 原子可以通过畴界扩散上来. 在远离畴界区域测量的 dI/dV 谱 D1 显示, dI/dV 谱的最小值位于费米能级以上 0.2 eV 附近 (图 2(f)), 费米能级附近的电子态主要来自价带贡献, 这与图 1(b) 的特征类似. 在靠近畴界区域测量的 dI/dV 谱 D2 显示, dI/dV 谱的最小值可以

非常接近费米能级, 而在非常靠近畴界区域测量的 dI/dV 谱 D3 显示, dI/dV 谱的最小值明显位于费米能级以下 0.1 eV 附近 (图 2(f)), 费米能级附近的电子态主要来自导带贡献. 在畴界附近和在图 1(c) 所示薄膜边缘处都发生了类似的能带弯曲特征. 在这些缺陷附近 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜可从 p 型转变为 n 型.

在 Pb 膜上室温沉积 SnTe, 然后对其加热退火也可以得到平整的薄膜, 但是在薄膜台面上经常可以发现有一些线状的缺陷, 如图 3(a) 中蓝色箭头所示. 线状缺陷在薄膜表面只延伸一段距离, 而且在线状缺陷两侧平坦处的原子分辨图都与图 3(b) 类似, 说明这种线状缺陷两侧的原子晶格取向一致. 这些特征与以前在 PbSe (001) 表面异质外延的 PbTe 薄膜中由位错导致的线状缺陷的特征类似^[39]. 在远离线状缺陷区域测量的 dI/dV 谱显示, dI/dV 谱的最小值位于费米能级以上 0.3 eV 附近 (图 3(c) 中红线), 而在靠近线状缺陷区域测量的 dI/dV 谱显示, dI/dV 谱的最小值移动到非常接近费米能级附近 (图 3(c) 中蓝线). 作为对比, 图 3(d) 是在 Pb 膜上仅室温沉积 SnTe

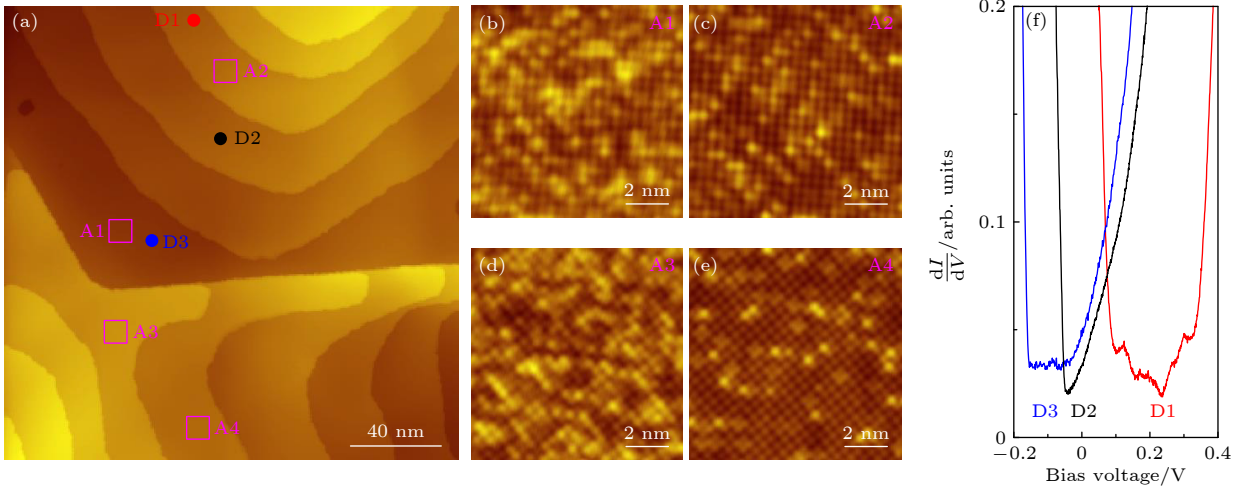


图 2 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ 的畴界附近的 STM 和 STS 测量 (a) 在 Pb 膜上先室温沉积 20 nm 厚的 SnTe 然后在 180 °C 继续沉积 20 nm 厚的 SnTe 得到的样品的 STM 图, 扫描尺寸 200 nm \times 200 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 2$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (b)—(e) 分别为在图 (a) 中 A1—A4 方框处的原子分辨 STM 图, 扫描尺寸 10 nm \times 10 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.8$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, 在图 (b)—(e) 中 Pb 含量分别为 25.3%, 16.6%, 32.7%, 7.9%; (f) 在图 (a) 中 D1—D3 点处测的 dI/dV 谱, 对于 dI/dV 谱 D1, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.40$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, 对于 dI/dV 谱 D2, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.20$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, 对于 dI/dV 谱 D3, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.25$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA

Fig. 2. STM and STS measurements near the grain boundary of $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ film grown on Pb: (a) STM image (200 nm \times 200 nm) of the sample obtained by deposition of 20 nm thick SnTe on Pb film at room temperature and then further deposition of 20 nm thick SnTe at 180 °C ($V_{\text{set}} = 2$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (b)—(e) atomically resolved STM images (10 nm \times 10 nm) taken at the squares A1—A4 in (a), respectively, $V_{\text{set}} = 0.8$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, the Pb contents of (b)—(e) are 25.3%, 16.6%, 32.7% and 7.9%; (f) dI/dV spectra taken at the dots D1—D3 in (a), respectively, for the dI/dV spectrum D1, $V_{\text{set}} = 0.40$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, for the dI/dV spectrum D2, $V_{\text{set}} = 0.20$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, for the dI/dV spectrum D3, $V_{\text{set}} = 0.25$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA.

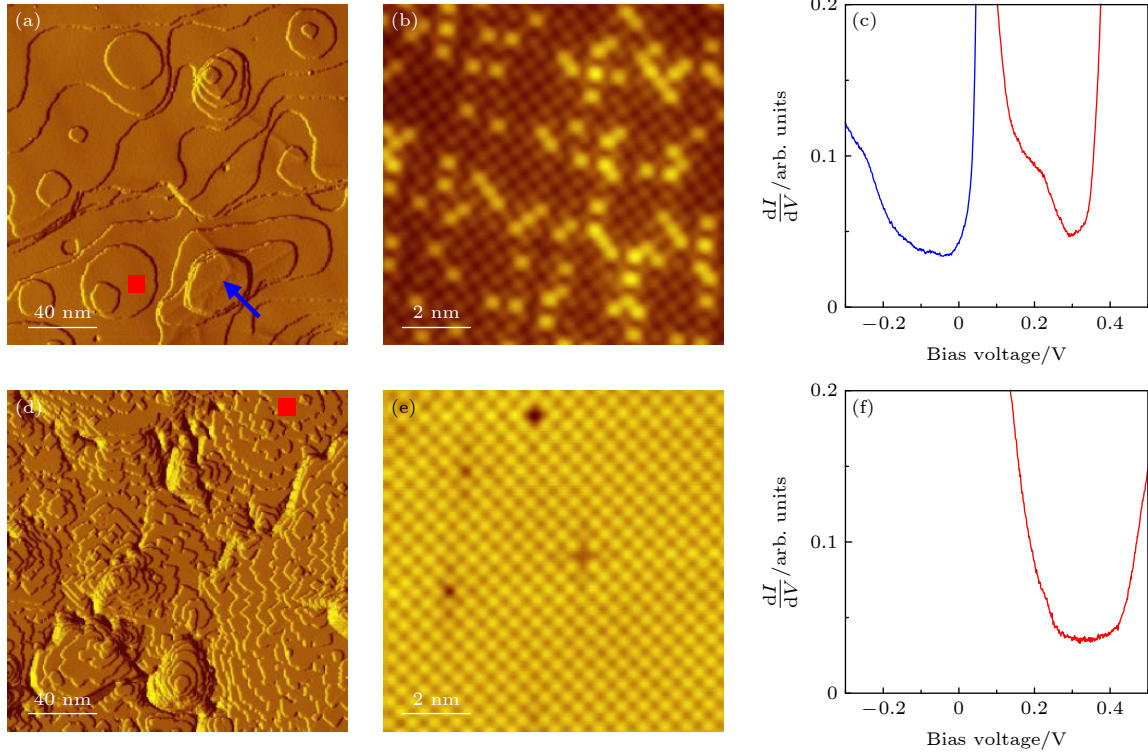


图 3 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ 的位错附近的 STM 和 STS 测量 (a) 在 Pb 膜上室温沉积 40 nm 厚的 SnTe 然后在 100 °C 退火 3 h 得到的样品的 STM 图, 扫描尺寸 200 nm \times 200 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 2$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (b) 在图 (a) 中红色方框处的原子分辨 STM 图, 扫描尺寸 10 nm \times 10 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.8$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, Pb 含量为 20.2%; (c) 在图 (a) 中红色方框和蓝色箭头处测的 dI/dV 谱, 对于红色 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.40$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, 对于蓝色 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.10$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (d) 在 Pb 膜上室温沉积 40 nm 厚的 SnTe 得到的样品的 STM 图, 扫描尺寸 200 nm \times 200 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 2$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (e) 在图 (d) 中红色方框处的原子分辨 STM 图, 扫描尺寸 10 nm \times 10 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.7$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (f) 在图 (d) 中红色方框处测的 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.58$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA

Fig. 3. STM and STS measurements near the dislocation of $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ film grown on Pb: (a) STM image (200 nm \times 200 nm) of the sample obtained by deposition of 40 nm thick SnTe on Pb film at room temperature and followed by annealing at 100 °C for 3 h ($V_{\text{set}} = 2$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (b) atomically resolved STM image (10 nm \times 10 nm) taken at the red square in (a), $V_{\text{set}} = 0.8$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, the Pb content is 20.2%; (c) dI/dV spectra taken at the red square and blue arrow in (a), respectively, for the red dI/dV spectrum, $V_{\text{set}} = 0.40$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, for the blue dI/dV spectrum, $V_{\text{set}} = 0.10$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (d) STM image (200 nm \times 200 nm) of the sample obtained by deposition of 40 nm thick SnTe on Pb film at room temperature ($V_{\text{set}} = 2$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (e) atomically resolved STM image (10 nm \times 10 nm) taken at the red square in (d), $V_{\text{set}} = 0.7$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (f) dI/dV spectrum taken at the red square in (d), $V_{\text{set}} = 0.58$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA.

而不退火的样品. 表面不平整, 有更密集的台阶. 表面的原子分辨图只有一些 SnTe 的本征点缺陷而没有观测到 Pb 原子 (图 3(e)), 表面测得的 dI/dV 谱显示, dI/dV 谱的最小值位于费米能级以上 0.3 eV 附近 (图 3(f)). 这说明图 3(b) 中的 Pb 原子是由于退火使底下 Pb 膜中的 Pb 原子扩散上来导致的, 但是这些扩散上来的 Pb 原子不足以使 dI/dV 谱的最小值移动到费米能级附近.

另外, 前面制备的各种样品中扩散进 SnTe 薄膜的 Pb 原子虽然对薄膜费米能级的改变效果不大, 但是这些 Pb 原子对磁通束缚态的影响非常大. 图 4(a), (b) 是在 Pb 膜上加温制备的 SnTe 薄膜, 原子分辨图显示的是干净的 (001) 表面, 而且表面形

貌非常平整. 施加垂直磁场后, 零偏压下的 dI/dV 谱映射图显示圆形的磁通 (图 4(c)). 沿着绿线处做一系列的 dI/dV 谱 (图 4(d)), 可以在磁通中很长一段距离看见 dI/dV 谱中有明显的零能峰. 作为对比, 图 4(e), (f) 是在 Pb 膜上加温共沉积 SnTe 和 PbTe 得到的 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜, 原子分辨图显示表面上可以看见有很多 Pb 原子. 虽然 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜表面形貌也非常平整, 台面很宽, 但是施加垂直磁场后, 零偏压下的 dI/dV 谱映射图显示磁通的形状不规则 (图 4(g)), 这是由于 Pb 含量在薄膜中的分布不均匀导致. 沿着绿线处做一系列的 dI/dV 谱显示, 横穿整个磁通的这些 dI/dV 谱中都没有零能峰 (图 4(h)). 以往的研究表明 [40,41],

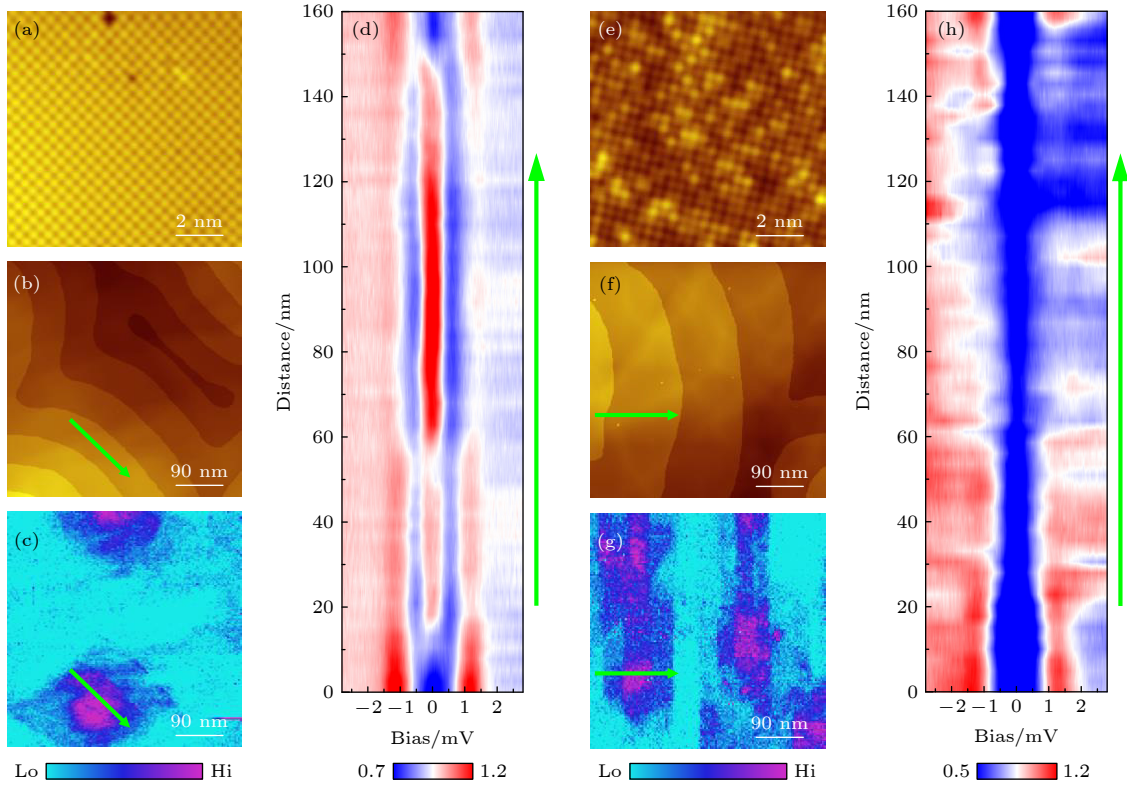


图 4 合金元素 Pb 对磁通束缚态的影响 (a) 在 190 °C 的 Pb 膜上沉积 SnTe 得到的样品表面的原子分辨 STM 图, 扫描尺寸 10 nm × 10 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.8$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (b) 该平整薄膜的大范围 STM 图, 扫描尺寸 450 nm × 450 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 2$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (c) 相应的零偏压 dI/dV 映射图, 磁场强度 $B = 0.02$ T, 扫描尺寸 450 nm × 450 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 6$ mV, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (d) 沿图 (c) 中绿色线条处测的一系列 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 3$ mV, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (e) 在 180 °C 的 Pb 膜上共沉积 SnTe 和 PbTe 得到的样品表面的原子分辨 STM 图, 扫描尺寸 10 nm × 10 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 0.7$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA, Pb 含量为 19.2%; (f) 该平整薄膜的大范围 STM 图, 扫描尺寸 450 nm × 450 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 2$ V, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (g) 相应的零偏压 dI/dV 映射图, 磁场强度 $B = 0.04$ T, 扫描尺寸 450 nm × 450 nm, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 6$ mV, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA; (h) 沿图 (g) 中绿色线条处测的一系列 dI/dV 谱, 样品偏压 $V_{\text{set}} = 3$ mV, 隧穿电流 $I_{\text{set}} = 0.1$ nA

Fig. 4. Effect of alloying element Pb on vortex bound states: (a) Atomically resolved STM image (10 nm × 10 nm) taken on the surface of the sample obtained by deposition of SnTe on Pb film at 190 °C ($V_{\text{set}} = 0.8$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (b) large-scale STM image (450 nm × 450 nm) of the flat film ($V_{\text{set}} = 2$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (c) corresponding zero-bias dI/dV map under magnetic field of $B = 0.02$ T (450 nm × 450 nm, $V_{\text{set}} = 6$ mV, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (d) series of dI/dV spectra taken along the green line in (c) ($V_{\text{set}} = 3$ mV, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (e) atomically resolved STM image (10 nm × 10 nm) taken on the surface of the sample obtained by co-deposition of SnTe and PbTe on Pb film at 180 °C ($V_{\text{set}} = 0.7$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA), the Pb content is 19.2%; (f) large-scale STM image (450 nm × 450 nm) of the flat film ($V_{\text{set}} = 2$ V, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (g) corresponding zero-bias dI/dV map under magnetic field of $B = 0.04$ T (450 nm × 450 nm, $V_{\text{set}} = 6$ mV, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA); (h) series of dI/dV spectra taken along the green line in (g) ($V_{\text{set}} = 3$ mV, $I_{\text{set}} = 0.1$ nA).

要在磁通中形成明显的零能峰, 需要电子的平均自由程大于磁通的相干长度. 而引入较多外来元素会增加薄膜电子态的无序程度^[40], 大大减小电子的平均自由程从而抑制磁通零能峰的形成. 纯净的 SnTe 薄膜的磁通中有明显的零能峰, 说明超导的 SnTe 薄膜属于干净超导体, 而 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜的磁通中没有零能峰, 说明引入较多 Pb 之后超导的 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜属于脏超导体. 因此, 对于 SnTe 类拓扑晶体绝缘体与超导体形成的异质结体系, 需要发展不需引入外来原子进行掺杂或者形成合金

就能调节异质结费米能级的方法. 而前面对薄膜边缘、畴界、位错附近的测量结果显示, 抑制费米能级钉扎效应是显著改善费米能级调节的一种有效途径.

4 结 论

本实验利用低温扫描隧道显微镜对在 Pb 膜上通过不同生长条件制备的 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜表面上多种呈准一维分布的缺陷对 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜电子态的影响进行研究. 测量显示, 远离缺陷且平整

的薄膜总是呈 p 型特征, dI/dV 谱的最小值总是位于费米能级以上 0.2—0.3 eV 附近. 虽然底部的 Pb 膜中的 Pb 原子可以用加热退火的方式通过这些缺陷扩散上来, 但是这些 Pb 原子对 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 的费米能级的影响不显著. 这是由于平整 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜与 Pb 形成的界面附近存在由二维分布的表面态引起的费米能级钉扎效应^[22,28], 阻碍了费米能级的调节. 形成鲜明对比的是, 在这些准一维分布的缺陷附近, $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜 dI/dV 谱的最小值可以从费米能级以上 0.2—0.3 eV 附近显著地移动到靠近费米能级甚至费米能级以下 0.1—0.2 eV 附近, 改变范围可以大到 0.4 eV 左右. 而之前报道的在拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 薄膜畴界附近和远离畴界处的 dI/dV 谱强度最低点的改变范围只有 0.1 eV 以内^[42,43], 因此薄膜中缺陷本身的电学效应无法造成电子态如此大范围的移动. 这说明抑制费米能级钉扎效应是解决 SnTe 类拓扑晶体绝缘体材料费米能级调节问题的关键因素. 另外, $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ 薄膜中含有过多的 Pb 会抑制磁通中零能峰的形成, 这对 SnTe 类超导异质结的品质也提出了更高要求. 本实验研究将对 SnTe 类拓扑超导器件的构型设计与改良起到促进作用, 发展不需要引入外来元素又能有效调节费米能级的新方法, 以最终实现对磁通中多重 Majorana 零能模的分辨和操控.

参考文献

- [1] Qi X L, Zhang S C 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 1057
- [2] Li Y Y, Jia J F 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 137401 (in Chinese) [李耀义, 贾金锋 2019 物理学报 **68** 137401]
- [3] He Y P, Hong J S, Liu X J 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 110302 (in Chinese) [何映萍, 洪健松, 刘雄军 2020 物理学报 **69** 110302]
- [4] Mourik V, Zuo K, Frolov S M, Plissard S R, Bakkers E P A M, Kouwenhoven L P 2012 *Science* **336** 1003
- [5] Nadj-Perge S, Drozdov I K, Li J, Chen H, Jeon S, Seo J, MacDonald A H, Bernevig B A, Yazdani A 2014 *Science* **346** 602
- [6] Xu J P, Wang M X, Liu Z L, Ge J F, Yang X J, Liu C H, Xu Z A, Guan D D, Gao C L, Qian D, Liu Y, Wang Q H, Zhang F C, Xue Q K, Jia J F 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 017001
- [7] Sun H H, Zhang K W, Hu L H, et al. 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 257003
- [8] Wang D F, Kong L Y, Fan P, Chen H, Zhu S Y, Liu W Y, Cao L, Sun Y J, Du S X, Schneeloch J, Zhong R D, Gu G D, Fu L, Ding H, Gao H J 2018 *Science* **362** 333
- [9] Liu Q, Chen C, Zhang T, et al. 2018 *Phys. Rev. X* **8** 041056
- [10] Li M, Li G, Cao L, Zhou X T, Wang X C, Jin C Q, Chiu C K, Pennycook S J, Wang Z Q, Gao H J 2022 *Nature* **606** 890
- [11] Yuan Y H, Pan J, Wang X T, et al. 2019 *Nat. Phys.* **15** 1046
- [12] Qi X L, Hughes T L, Raghu S, Zhang S C 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 187001
- [13] Zhang F, Kane C L, Mele E J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 056402
- [14] Liu X J, He J J, Law K T 2014 *Phys. Rev. B* **90** 235141
- [15] Fang C, Gilbert M J, Bernevig B A 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 106401
- [16] Kobayashi S, Furusaki A 2020 *Phys. Rev. B* **102** 180505
- [17] Luo X J, Pan X H, Shi Y L, Wu F C 2025 *Phys. Rev. B* **111** 144501
- [18] Liu T T, Wan C Y, Yang H, et al. 2024 *Nature* **633** 71
- [19] Wang J F, Wang N, Huang H Q, Duan W H 2016 *Chin. Phys. B* **25** 117313
- [20] Zhang D M, Baek H, Ha J, Zhang T, Wyrick J, Davydov A V, Kuk Y, Strosio J A 2014 *Phys. Rev. B* **89** 245445
- [21] Zeljkovic I, Walkup D, Assaf B A, Scipioni K L, Sankar R, Chou F C, Madhavan V 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 849
- [22] Liu T T, Yi Z X, Xie B J, Zheng W Y, Guan D D, Wang S Y, Zheng H, Liu C H, Yang H, Li Y Y, Jia J F 2024 *Sci. China-Phys. Mech. Astron.* **67** 286811
- [23] Xie B J, Yi Z X, Zheng W Y, Gao Z H, Guan D D, Liu X X, Liu L, Wang S Y, Zheng H, Liu C H, Yang H, Li Y Y, Jia J F 2025 *Nano Lett.* **25** 7981
- [24] Liu W, Hu Q, Wang X, Zhong Y, Yang F, Kong L, Cao L, Li G, Peng Y, Okazaki K, Kondo T, Jin C, Xu J, Gao H J, Ding H 2022 *Quantum Front.* **1** 20
- [25] Wan C Y, Zhao Y J, Li Y Y, Jia J F, Liu J W 2024 *Quantum Front.* **3** 20
- [26] Mandal P S, Springholz G, Volobuev V V, Caha O, Varykhalov A, Golias E, Bauer G, Rader O, Sánchez-Barriga J 2017 *Nat. Commun.* **8** 968
- [27] Volobuev V V, Mandal P S, Galicka M, et al. 2017 *Adv. Mater.* **29** 1604185
- [28] Tung R T 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 6078
- [29] Chen R S, Ding G L, Zhou Y, Han S T 2021 *J. Mater. Chem. C* **9** 11407
- [30] Shen P C, Su C, Lin Y X, et al. 2021 *Nature* **593** 211
- [31] Yang Z, Kim C, Lee K Y, Lee M, Appalakondaiah S, Ra C H, Watanabe K, Taniguchi T, Cho K, Hwang E, Hone J, Yoo W J 2019 *Adv. Mater.* **31** 1808231
- [32] Parto K, Pal A, Chavan T, Agashiwala K, Yeh C H, Cao W, Banerjee K 2021 *Phys. Rev. Appl.* **15** 064068
- [33] Yang H, Li Y Y, Liu T T, et al. 2019 *Adv. Mater.* **31** 1905582
- [34] Yang H, Li Y Y, Liu T T, Guan D D, Wang S Y, Zheng H, Liu C H, Fu L, Jia J F 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 136802
- [35] Tanaka Y, Sato T, Nakayama K, Souma S, Takahashi T, Ren Z, Novak M, Segawa K, Ando Y 2013 *Phys. Rev. B* **87** 155105
- [36] Liu X C, Choi M S, Hwang E, Yoo W J, Sun J 2022 *Adv. Mater.* **34** 2108425
- [37] Yu H, Gupta S, Kutana A, Yakobson B I 2021 *J. Phys. Chem. Lett.* **12** 4299
- [38] Nill K W, Calawa A R, Harman T C 1970 *Appl. Phys. Lett.* **16** 375
- [39] Springholz G, Wiesauer K 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 015507
- [40] Renner C, Kent A D, Niedermann P, Fischer O, Lévy F 1991 *Phys. Rev. Lett.* **67** 1650
- [41] Ning Y X, Song C L, Wang Y L, Chen X, Jia J F, Xue Q K, Ma X C 2010 *J. Phys. : Condens. Matter* **22** 065701
- [42] Liu Y, Li Y Y, Gilks D, Lazarov V K, Weinert M, Li L 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 186804
- [43] Liu Y, Li Y Y, Rajput S, Gilks D, Lari L, Galindo P L, Weinert M, Lazarov V K, Li L 2014 *Nat. Phys.* **10** 294

Influence of defects on electronic property of $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ heterostructure*

YI Zhaoxia^{1) #} YANG Hao^{1) 2) #} ZHENG Weiyan¹⁾ XIE Bangjin¹⁾
 GAO Zehua¹⁾ CHEN Weijiong^{1) 2)} YI Hemian^{1) 2)} LIU Xiaoxue^{1) 2)}
 LIU Liang^{1) 2)} GUAN Dandan^{1) 2)} WANG Shiyong^{1) 2)} ZHENG Hao^{1) 2)}
 LIU Canhua^{1) 2)} LI Yaoyi^{1) 2) †} JIA Jinfeng^{1) 2)}

1) (*Tsung-Dao Lee Institute, Key Laboratory of Artificial Structures and Quantum Control, School of Physics and Astronomy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

2) (*Hefei National Laboratory, Hefei 230088, China*)

(Received 30 July 2025; revised manuscript received 12 September 2025)

Abstract

SnTe-type topological crystalline insulators (TCIs) possess multiple Dirac-like topological surface states under the mirror-symmetry protection. Superconducting SnTe-type TCIs are predicted to form multiple Majorana zero modes (MZMs) in a single magnetic vortex. For the spatially isolated MZMs, there is only one MZM in a single vortex at surface. However, experimental demonstration of coupling the two isolated MZMs by changing wire length or intervortex distance is very challenging. For the multiple MZMs, two or more MZMs can coexist together in a single vortex. Thus, the novel property is expected to significantly reduce the difficulty in producing hybridization between MZMs. Recently, the experimental evidence for multiple MZMs has been observed in a single vortex of the superconducting SnTe/Pb heterostructure. However, SnTe is a heavily p-type semiconductor which is very difficult to induce the p-type to n-type transition via doping or alloying. The study on the Fermi-level tuning of SnTe-type TCIs is important for detecting and manipulating multiple MZMs. In this work, we report the influence of defects, such as film edge, grain boundary and dislocation, on the electronic property of $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$. The $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ films are prepared on the Pb (111) films grown on the Si (111) substrate by the molecular beam epitaxial technology. The structural and electronic properties of the $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ films are detected in situ by using low-temperature scanning tunneling microscopy and spectroscopy. The differential conductance tunneling spectra show that the minima of dI/dV spectra taken in the areas near the film edge, the grain boundary and the dislocation of $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ grown on Pb can be significantly changed to the energy very close to the Fermi level or even about -0.2 eV below the Fermi level, whereas the minima of dI/dV spectra taken in the areas far away from the defects are always at about 0.2 eV above the Fermi level. It indicates that these quasi one-dimensional defects, rather than Pb alloying, play an important role in modifying electronic property of the $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ heterostructure. Moreover, the Pb alloying will suppress the formation of zero-energy peak in the vortex. These results are expected to develop the new methods that do not require doping or alloying for the Fermi-level tuning of the SnTe-type topological superconducting devices.

Keywords: topological crystalline insulator, defect, superconducting heterostructure, scanning tunneling microscope

PACS: 68.37.Ef, 68.55.-a, 73.20.At, 74.78.-w

DOI: [10.7498/aps.74.20251021](https://doi.org/10.7498/aps.74.20251021)

CSTR: [32037.14.aps.74.20251021](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20251021)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12474156, 12488101, 12474121, 92365302, 22325203, 52102336), the Innovation Program for Quantum Science and Technology (Grant No. 2021ZD0302500), and the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality, China (Grant Nos. 2019SHZDZX01, 24LZ1401000).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: yaoyili@sjtu.edu.cn

缺陷对 $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ 异质结电子态的影响

易朝霞 杨浩 郑炜严 谢邦晋 郜泽华 陈维炯 伊合绵 刘晓雪 刘亮 管丹丹 王世勇 郑浩 刘灿华 李耀义 贾金锋

Influence of defects on electronic property of $\text{Sn}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}/\text{Pb}$ heterostructure

YI Zhaoxia YANG Hao ZHENG Weiyan XIE Bangjin GAO Zehua CHEN Weijiong YI Hemian LIU Xiaoxue LIU Liang GUAN Dandan WANG Shiyong ZHENG Hao LIU Canhua LI Yaoyi JIA Jinfeng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 206801 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20251021

CSTR: 32037.14.aps.74.20251021

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20251021>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

用于扫描隧道显微镜的低噪声前置电流放大器

Low-noise preamplifier for scanning tunneling microscope

物理学报. 2024, 73(13): 130702 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240560>

表面单分子量子态的探测和调控研究进展

Advances in detection and regulation of surface-supported molecular quantum states

物理学报. 2022, 71(6): 060701 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212324>

基于原子操纵技术的人工量子结构研究

Investigation of artificial quantum structures constructed by atom manipulation

物理学报. 2021, 70(2): 020701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201501>

团簇状缺陷对纤维束断裂过程的影响

Influence of cluster shaped defects on fracture process of fiber bundle

物理学报. 2021, 70(20): 204602 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210310>

反铁磁轴子绝缘体候选材料 EuIn_2As_2 的表面原子排布和电子结构

Surface and electronic structure of antiferromagnetic axion insulator candidate EuIn_2As_2

物理学报. 2021, 70(18): 186801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210783>

准二维湿颗粒体系融化过程中的结构与缺陷

Structure and defects in melting process of quasi-two-dimensional wet particle system

物理学报. 2021, 70(11): 116401 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202037>